

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2020年8月27日(27.08.2020)



(10) 国際公開番号

WO 2020/170778 A1

- (51) 国際特許分類:
C08G 59/20 (2006.01) *C09J 163/00* (2006.01)
C09J 11/04 (2006.01) *C09K 3/10* (2006.01)
C09J 11/06 (2006.01) *C08L 63/00* (2006.01)
H01L 23/29 (2006.01) *H01L 21/60* (2006.01)
H01L 23/31 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2020/003854
- (22) 国際出願日: 2020年2月3日(03.02.2020)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2019-029526 2019年2月21日(21.02.2019) JP
- (71) 出願人: ナミックス株式会社 (NAMICS CORPORATION) [JP/JP]; 〒9503131 新潟県新潟市北区濁川3993番地 Niigata (JP).
- (72) 発明者: 増子 努(MASUKO Tsutomu); 〒9503131 新潟県新潟市北区濁川3993番地 ナミックス株式会社内 Niigata (JP). 新井 史紀(ARAI Fuminori); 〒9503131 新潟県新潟市北区濁川3993番地 ナミックス株式会社内 Niigata (JP).
- (74) 代理人: 特許業務法人 津国, 外 (TSUKUNI & ASSOCIATES et al.); 〒1020083 東京都千代田区麹町5-3-1 麹町ビジネスセンター Tokyo (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ,

(54) Title: LIQUID EPOXY RESIN COMPOSITION, AND CURED PRODUCT OBTAINED BY CURING SAME

(54) 発明の名称: 液状エポキシ樹脂組成物及びそれを硬化させて得られる硬化物

(57) Abstract: The purpose of the present invention is to provide: a liquid epoxy resin composition which is a low-viscosity liquid at room temperature, exhibits sufficient adhesive strength, and provides a cured product exhibiting a lower dielectric constant and dielectric loss tangent than conventional products; and a cured product obtained by curing the liquid epoxy resin composition. The liquid epoxy resin composition according to the present invention contains (A) a first epoxy resin, (B) a second epoxy resin, (C) a curing agent capable of curing the epoxy resins, and (D) a filler at a specific ratio. The liquid epoxy resin composition according to the present invention is a low-viscosity liquid at room temperature, and exhibits sufficient adhesion strength to fix electronic components to a substrate. In addition, a cured product obtained by curing the liquid epoxy resin composition according to the present invention exhibits a lower dielectric constant and dielectric loss tangent than cured products obtained from conventional liquid epoxy resin compositions. Thus, by using the liquid epoxy resin composition according to the present invention, electronic components, which contain finer wiring and can be adopted for higher-frequency signal processing, can be easily fabricated, and the electronic components can be mounted on a substrate with sufficient adhesive strength.

(57) 要約: 本発明は、常温では低粘度の液体であり、かつ十分な接着強度を示すと共に、従来品に比して低い比誘電率及び誘電正接を示す硬化物を与える液状エポキシ樹脂組成物及びそれを硬化させて得られる硬化物等を提供することを目的とする。本発明の液状エポキシ樹脂組成物は、(A) 第1のエポキシ樹脂、(B) 第2のエポキシ樹脂、(C) エポキシ樹脂を硬化させることができる硬化剤及び(D) 充填剤を特定の組成で含む。本発明の液状エポキシ樹脂組成物は、常温では低粘度の液体であり、かつ電子部品を基板に固定するのに十分な接着強度を示す。また、本発明の液状エポキシ樹脂組成物を硬化させて得られる硬化物は、従来品が与える硬化物に比して低い比誘電率及び誘電正接を示す。したがって、本発明の液状エポキシ樹脂組成物を用いると、より微細化された配線を含み、より高周波の信号を処理することに対応し得る電子部品を容易に作成することができる。またこの電子部品を、十分な接着強度をもって基板に実装することができる。

NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT,
QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL,
ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG,
US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類：

- 一 国際調査報告 (条約第21条(3))

明 細 書

発明の名称：

液状エポキシ樹脂組成物及びそれを硬化させて得られる硬化物

技術分野

[0001] 本発明は、電子部品の製作において接着剤又は封止材として好適に使用し得る液状エポキシ樹脂組成物、それを硬化させて得られる硬化物及びその硬化物を含む電子部品に関するものである。

背景技術

[0002] 近年、電子機器の高性能化に伴い、それらの電子機器に含まれる回路において、より高周波の信号を処理することが求められている。これに伴い、信号の伝送時に生じる信号の遅延や伝送損失が問題となる。

信号の遅延や伝送損失は、電子機器内の基板や電子部品に含まれる絶縁体の誘電特性を改善すること、特に、比誘電率及び誘電正接を低下させることによって抑制することができる。

[0003] また、電子部品内の配線が近年著しく微細化され、配線間や端子間の間隔が極めて狭くなっており、優れた絶縁性の確保が重要な課題となっている。短絡を回避し得る十分な絶縁を確保するためには、より比誘電率の低い絶縁体を用いることが必要になる。

[0004] 従来より、電子機器に用いられる電子部品、例えば半導体チップの封止やアンダーフィル用途には、信頼性の保持等を目的として、エポキシ樹脂組成物を含む接着剤等がしばしば用いられる。このため、今後の更なる配線の微細化や、更に高周波の信号を処理することに対応し得る、より低い比誘電率及び誘電正接を示す硬化物を与えるエポキシ樹脂組成物の開発が求められている。特に、超高周波の信号を扱う、第5世代移動通信システムや車載用の準ミリ波レーダーに適した封止材やアンダーフィル等の開発は、喫緊の課題となっている。

また、電子部品用の接着剤等は、毛細管現象を利用した狭小部への注入が

必要になることがある。そのため、電子部品用の接着剤等に含まれるエポキシ樹脂組成物は、十分な接着強度を示すことはもちろん、製造される温度において低粘度の液体であることが必要である。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開2018-030981号公報

特許文献2：特開2014-177530号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] しかし、低い比誘電率及び誘電正接、十分な接着強度、常温における低い粘度という上記の要求全てを満足し得るエポキシ樹脂組成物は、従来知られていなかった。例えば特許文献1及び2は、誘電正接の低い硬化物をもたらすエポキシ樹脂組成物を開示している。しかし、これらの組成物は、プリント基板等を作成するための接着フィルムの形態で用いることが意図されているので、その粘度は十分に低いものではない。また、これらの組成物が与える硬化物については、誘電正接の低下は確認されているものの、比誘電率の低下は確認されていない。

[0007] 本発明は、上記した従来技術の問題点を解決するため、常温では低粘度の液体であり、かつ十分な接着強度を示すと共に、従来品に比して低い比誘電率及び誘電正接を示す硬化物を与える液状エポキシ樹脂組成物及びそれを硬化させて得られる硬化物等を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

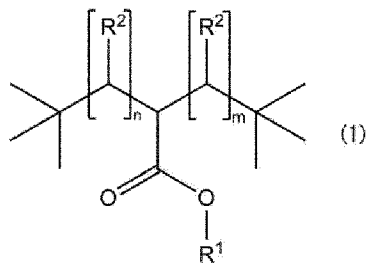
[0008] 本発明者らは、上記問題点を解決するために鋭意研究を重ねた結果、本発明に到達した。

[0009] すなわち、本発明は、以下に限定されるものではないが、次の発明を包含する。

[0010] 1. 下記成分（A）～（D）：

(A) 下記式 (1) :

[化1]



[式中、

R¹は、1つ～3つのエポキシ基を含み、かつエーテル結合を含んでいてもよい1価の炭化水素基を表し、

R¹が2つ又は3つのエポキシ基を含むとき、R¹は分岐した構造を有し、

それぞれのR²は、独立に水素原子又はメチル基を表し、

n及びmは、各々独立に1～10の整数を表す。]

で表される構造を有する第1のエポキシ樹脂

(B) 式(1)で表される構造以外の構造を有する第2のエポキシ樹脂

(C) エポキシ樹脂を硬化させることができる硬化剤

(D) 充填剤

を含む液状エポキシ樹脂組成物であって、

該成分(A)の質量が、該成分(A)と該成分(B)の合計質量に対し、40%以上、80%以下であり、

該成分(D)の質量が、液状エポキシ樹脂組成物の総質量に対し、40%以上、65%以下である、液状エポキシ樹脂組成物。

[0011] 2. 硬化促進剤を更に含む、前項1記載の液状エポキシ樹脂組成物。

[0012] 3. 前記成分(B)が、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、アミノフェノール型エポキシ樹脂及びナフタレン型エポキシ樹脂からなる群より選択される少なくとも1種を含む、前項1又は2記載の液状エポキシ樹脂組成物。

[0013] 4. 前記成分(C)が、酸無水物、アミン化合物及びフェノール樹脂からな

る群より選択される少なくとも１種を含む、前項１～３のいずれか一項記載の液状エポキシ樹脂組成物。

[0014] ５．前記成分（Ｄ）が、シリカ充填剤及びアルミナ充填剤からなる群より選択される少なくとも１種を含む、前項１～４のいずれか一項記載の液状エポキシ樹脂組成物。

[0015] ６．前項１～５のいずれか一項記載の液状エポキシ樹脂組成物を硬化させて得られる、硬化物。

[0016] ７．前項１～５のいずれか一項記載の液状エポキシ樹脂組成物を含む、接着剤又は封止材。

[0017] ８．前項１～５のいずれか一項記載の液状エポキシ樹脂組成物を含む、フィルム。

[0018] ９．前項６記載の硬化物、前項７記載の接着剤若しくは封止材の硬化物、又は前項８記載のフィルムの硬化物を含む、電子部品。

発明の効果

[0019] 本発明の液状エポキシ樹脂組成物は、常温では低粘度の液体であり、かつ電子部品を基板に固定するのに十分な接着強度を示す。また、本発明の液状エポキシ樹脂組成物を硬化させて得られる硬化物は、従来品が与える硬化物に比して低い比誘電率及び誘電正接を示す。したがって、本発明の液状エポキシ樹脂組成物を用いると、より微細化された配線を含み、より高周波の信号を処理することに対応し得る電子部品を容易に作成することができ、またこの電子部品を、十分な接着強度をもって基板に実装することができる。

図面の簡単な説明

[0020] [図１]アンダーフィル材によって封止されている、チップがフリップチップ接続によって基板に実装された部位の断面図である。

発明を実施するための形態

[0021] 以下、本発明の実施形態について詳細に説明する。

本発明は、下記成分（Ａ）～（Ｄ）：

（Ａ）第１のエポキシ樹脂

(B) 第2のエポキシ樹脂

(C) エポキシ樹脂を硬化させることができる硬化剤

(D) 充填剤

を含み、

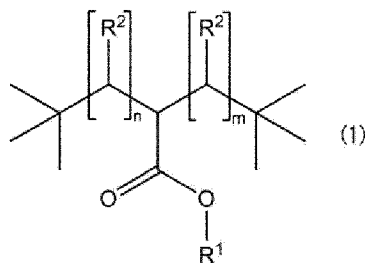
上記成分(A)の質量が、上記成分(A)と上記成分(B)の合計質量に対し、40%以上、80%以下であり、

上記成分(D)の質量が、上記成分(A)～(D)の合計質量に対し、40%以上、80%以下である、液状エポキシ樹脂組成物に関する。本発明の液状エポキシ樹脂組成物に含まれる上記成分(A)～(D)に関し、以下に説明する。

[0022] [第1のエポキシ樹脂(成分(A))]

本発明の液状エポキシ樹脂組成物は、下記式(1)：

[化2]



[式中、

R¹は、1つ～3つのエポキシ基を含み、かつエーテル結合を含んでいてもよい1価の炭化水素基を表し、

R¹が2つ又は3つのエポキシ基を含むとき、R¹は分岐した構造を有し、

それぞれのR²は、独立に水素原子又はメチル基を表し、

n及びmは、各々独立に1～10の整数を表す。]

で表される構造を有する第1のエポキシ樹脂を含有する。以降、この第1のエポキシ樹脂を「成分(A)」と称する場合がある。成分(A)は、上記式(1)で表される、特定の構造を有する分岐状脂肪族カルボン酸のエステルである。成分(A)は、本発明の液状エポキシ樹脂組成物を硬化させて得ら

れる硬化物の誘電特性を向上させる作用を示すので、成分（A）の使用は本発明において重要である。成分（A）は、単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

[0023] 上記式（1）におけるR¹は、1価の炭化水素基である。1価の炭化水素基とは、炭化水素の炭素原子から1つの水素原子を除去することにより生じる1価の基を指す。1価の炭化水素基としては、例えば、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、シクロアルキル基、アルキル置換シクロアルキル基、アリール基、アラルキル基、アルカリル基が挙げられる。

[0024] 上記アルキル基、アルケニル基、及びアルキニル基（以下、「アルキル基等」と総称する。）の炭素数には特に限定はない。上記アルキル基の炭素数は、通常1～20、好ましくは2～18、更に好ましくは3～17、より好ましくは4～16、特に好ましくは5～15である。また、上記アルケニル基及びアルキニル基の炭素数は、通常2～20、好ましくは2～18、更に好ましくは3～17、より好ましくは4～16、特に好ましくは5～15である。上記アルキル基等が環状構造を含む場合、上記アルキル基等の炭素数は、通常4～20、好ましくは4～18、更に好ましくは5～16、より好ましくは6～15である。上記アルキル基等の炭素数は、例えばLC-TOFや核磁気共鳴法（NMR法）によって特定できる。

[0025] 上記アルキル基等の構造には特に限定はない。上記アルキル基等は、直鎖状でもよく、側鎖を有していてもよい。上記アルキル基等は、鎖状構造でもよく、環状構造（シクロアルキル基、シクロアルケニル基、及びシクロアルキニル基）でもよい。上記アルキル基等は、他の置換基を1種又は2種以上有していてもよい。例えば、上記アルキル基等は、置換基として、炭素原子及び水素原子以外の原子を含む置換基を有していてもよい。また、上記アルキル基等は、鎖状構造中又は環状構造中に炭素原子及び水素原子以外の原子を1つ又は2つ以上含んでいてもよい。上記炭素原子及び水素原子以外の原子としては、例えば、酸素原子及び窒素原子の1種又は2種以上が挙げられる。

[0026] 上記式(1)における R^1 は、1つ～3つのエポキシ基を含む。好ましくは、 R^1 は、1つ又は2つのエポキシ基を含む。より好ましくは、 R^1 は、2つのエポキシ基を含む。

R^1 が2つ又は3つのエポキシ基を含むとき、 R^1 は分岐した構造を有する。すなわちこの場合、 R^1 は側鎖を有する。

このエポキシ基に加えて、 R^1 は、アルキル、シクロアルキル、ヘテロシクリル、アリール、ヘテロアリール、アリル、アルコキシ、アルキルチオ、アリールオキシ、ヒドロキシル、ニトロ、アミド、アジド、シアノ、アシロキシ、カルボキシ、スルホキシ、アクリロキシ、シロキシ、またはエステルで置換されていてもよい。すなわち R^1 は、エーテル結合を含んでいてもよい。

[0027] 一態様において、 R^1 は、グリシジルオキシ基を1つ以上含む。他の一態様において、 R^1 は、グリシジルオキシ基を1つ又は2つ含む。他の一態様において、 R^1 は、グリシジルオキシ基を2つ含む。

[0028] 上記式(1)において、 n 及び m は、好ましくは1～8であり、より好ましくは1～6であり、特に好ましくは2～4である。一態様において、 $n=4$ 、 $m=2$ であり、 R^2 のうち2個がメチル基であり、他の R^2 が水素原子である。

[0029] 本発明の液状エポキシ樹脂組成物における成分(A)の含有量は、特に限定されないが、本発明の液状エポキシ樹脂組成物100質量%に対し、好ましくは20～40質量%であり、更に好ましくは30～40質量%である。成分(A)の含有量が少なすぎると、本発明の液状エポキシ樹脂組成物を硬化させて得られる硬化物の誘電特性が十分向上されない。一方、成分(A)の含有量が多すぎると、本発明の液状エポキシ樹脂組成物の示す接着強度が不十分になる。

[0030] 成分(A)の状態に特に制限はなく、本発明の組成物が液状である限り、成分(A)は液状であってもよく、固体であってもよい。2種以上の成分(A)を併用する場合、成分(A)の状態は、全ての成分(A)を混合して得られる混合物の状態をいう。本発明において、好ましくは、成分(A)は液

状である。また、成分（Ａ）の粘度（２５℃）は、特に限定されないが、好ましくは０．０１～５Pa・sであり、より好ましくは０．１～３Pa・sであり、特に好ましくは０．１～１Pa・sである。

[0031] なお近年、エポキシ樹脂用の硬化剤としてある種のエステル化合物が用いられる場合がある。このようなエステル化合物は通常「活性エステル化合物」と称され、フェノールエステル、チオフェノールエステル等の、エポキシ基との反応性を向上させる構造（例えば、特開昭６２－０５３３２７号公報を参照）を有しているため、その名称が示す通り、エポキシ基との反応性が相対的に高いエステル化合物である。

一方、上記式（１）より明らかなように、上記成分（Ａ）は、特定の構造を有する分岐状脂肪族カルボン酸が、エステル結合を介して炭化水素基 R^1 と結合した構造を有するエステル化合物である。しかし成分（Ａ）は、エポキシ基との反応性を向上させる構造を有しておらず、硬化剤としての作用を期待しうる物質ではない。

[0032] 成分（Ａ）は、市販品（例えば、FOLDI E101、FOLDI E201（日産化学製）等）として入手することができる。

[0033] [第２のエポキシ樹脂（成分（Ｂ））]

本発明の液状エポキシ樹脂組成物は、上記式（１）で表される構造以外の構造を有する第２のエポキシ樹脂を含有する。以降、この第２のエポキシ樹脂を「成分（Ｂ）」と称する場合がある。

本発明においては、２種のエポキシ樹脂、即ち成分（Ａ）及び（Ｂ）を組み合わせて用いる。上記したように、成分（Ａ）の使用は本発明において重要であるが、エポキシ樹脂として成分（Ａ）のみを用いると、接着強度が不十分になる。そのため、十分な接着強度を確保する目的で、成分（Ａ）と組み合わせて成分（Ｂ）を用いる。

[0034] 成分（Ｂ）は、上記式（１）で表される構造以外の構造を有するエポキシ樹脂である限り特に限定されず、公知のそのようなエポキシ樹脂を用いることができる。成分（Ｂ）は、単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよ

い。成分（Ｂ）の状態に特に制限はなく、本発明の組成物が液状である限り、成分（Ｂ）は液状であってもよく、固体であってもよい。２種以上の成分（Ｂ）を併用する場合、成分（Ｂ）の状態は、全ての成分（Ｂ）を混合して得られる混合物の状態をいう。本発明において、好ましくは、成分（Ｂ）は液状である。

[0035] 成分（Ｂ）は、脂肪族エポキシ樹脂と芳香族エポキシ樹脂に大別される。

脂肪族エポキシ樹脂の例としては、

ー（ポリ）プロピレングリコールジグリシジルエーテル、ブタンジオールジグリシジルエーテル、ネオペンチルグリコールジグリシジルエーテル、１，６－ヘキサジオールジグリシジルエーテル、トリメチロールプロパンジグリシジルエーテル、ポリテトラメチレンエーテルグリコールジグリシジルエーテル、グリセリンジグリシジルエーテル、ネオペンチルグリコールジグリシジルエーテルのようなジエポキシ樹脂；

ートリメチロールプロパントリグリシジルエーテル、グリセリントリグリシジルエーテルのようなトリエポキシ樹脂；

ービニル（３，４－シクロヘキセン）ジオキシド、２－（３，４－エポキシシクロヘキシル）－５，１－スピロ－（３，４－エポキシシクロヘキシル）

ーｍ－ジオキサンのような脂環式エポキシ樹脂；

ーテトラグリシジルビス（アミノメチル）シクロヘキサンのようなグリシジルアミン型エポキシ樹脂；

ー１，３－ジグリシジル－５－メチル－５－エチルヒダントインのようなヒダントイン型エポキシ樹脂；及び

ー１，３－ビス（３－グリシドキシプロピル）－１，１，３，３－テトラメチルジシロキサンのようなシリコーン骨格を有するエポキシ樹脂

などが挙げられるが、これらに限定されるものではない。

脂肪族エポキシ樹脂は、分子量が１５０～８００であるものが特に好ましい。

[0036] 一方、芳香族エポキシ樹脂は、ベンゼン環等の芳香環を含む構造を有する

エポキシ樹脂である。ビスフェノール A 型エポキシ樹脂など、従来頻用されているエポキシ樹脂にはこの種のものが多い。

芳香族エポキシ樹脂の例としては、

- ービスフェノール A 型エポキシ樹脂；
- ー p - グリシジルオキシフェニルジメチルトリスビスフェノール A ジグリシジルエーテルのような分岐状多官能ビスフェノール A 型エポキシ樹脂；
- ービスフェノール F 型エポキシ樹脂；
- ーノボラック型エポキシ樹脂；
- ーフルオレン型エポキシ樹脂；
- ービフェニルアラルキルエポキシ樹脂；
- ー p - t e r t - ブチルフェニルグリシジルエーテル、1, 4 - フェニルジメタノールジグリシジルエーテルのようなジエポキシ樹脂；
- ー 3, 3', 5, 5' - テトラメチル - 4, 4' - ジグリシジルオキシビフェニルのようなビフェニル型エポキシ樹脂；
- ージグリシジルアニリン、ジグリシジルトルイジン、トリグリシジル - p - アミノフェノール、テトラグリシジル - m - キシリレンジアミンのようなアミノフェノール型エポキシ樹脂；及び
- ーナフタレン型エポキシ樹脂

などが挙げられるが、これらに限定されるものではない。

芳香族エポキシ樹脂は、分子量が 200 ~ 400 であるものが特に好ましい。

一態様においては、成分 (B) が、ビスフェノール F 型エポキシ樹脂、ビスフェノール A 型エポキシ樹脂、アミノフェノール型エポキシ樹脂及びナフタレン型エポキシ樹脂からなる群より選択される少なくとも 1 種を含む。

[0037] 本発明においては、成分 (B) が、少なくとも 1 種の、ヒドロキシル基を有していないエポキシ樹脂を含むことが好ましい。これは、エポキシ樹脂のヒドロキシル基の含有量が高くなると、そのエポキシ樹脂を硬化させて得られる硬化物の誘電率や誘電正接が低下する傾向にあるからである。

また、ヒドロキシル基を有していないエポキシ樹脂を用いても、上記硬化物は必然的に、硬化時のエポキシ基の開裂により生じるヒドロキシル基を含む。あるエポキシ樹脂のエポキシ当量が大きいほど、一定量のそのエポキシ樹脂を硬化させて得られる硬化物におけるそのようなヒドロキシル基の含有量は低くなる。ただし、エポキシ樹脂のエポキシ当量が大きすぎると、十分な数の架橋が形成されず、十分な硬化が得られない。そのため本発明においては、成分（Ｂ）が、少なくとも１種の、 $110 \sim 200 \text{ g/eq}$ のエポキシ当量を有するエポキシ樹脂を含むことが特に好ましい。このエポキシ樹脂のエポキシ当量は、 $120 \sim 180 \text{ g/eq}$ がより好ましく、 $130 \sim 150 \text{ g/eq}$ が更に好ましい。

他の一つの態様において、成分（Ｂ）は、硬化物の誘電特性を低下させない観点から、実質的に窒素原子を含まない。

[0038] 本発明の液状エポキシ樹脂組成物における成分（Ｂ）の含有量は、特に限定されないが、本発明の液状エポキシ樹脂組成物 100 質量％に対し、好ましくは 10～30 質量％である。

なお、後述する成分（Ｅ）（硬化促進剤）としてエポキシ樹脂を含む成分（Ｅ）を用いる場合、成分（Ｂ）の質量は、成分（Ｅ）に含まれるエポキシ樹脂を含む質量である。

[0039] 本発明において、成分（Ａ）の質量は、成分（Ａ）と上記成分（Ｂ）の合計質量に対し、40％以上、80％以下である。40％未満であると、本発明の液状エポキシ樹脂組成物を硬化させて得られる硬化物の誘電特性が十分向上されない。一方、80％超であると、本発明の液状エポキシ樹脂組成物の示す接着強度が不十分になる。成分（Ａ）の質量は、成分（Ａ）と成分（Ｂ）の合計質量に対し、好ましくは 40％以上、80％以下であり、より好ましくは 60％以上、80％以下である。

[0040] 成分（Ｂ）は、市販品（例えば、YDF8170（新日鉄製）、EXA850CRP（DIC製）等）として入手することができる。

[0041] [硬化剤（成分（Ｃ））]

本発明の液状エポキシ樹脂組成物は、エポキシ樹脂を硬化させることができる硬化剤を含有する。以降、この硬化剤を「成分（Ｃ）」と称する場合がある。

[0042] 成分（Ｃ）は、エポキシ樹脂を硬化させることができる限り特に限定されず、公知の硬化剤を用いることができる。成分（Ｃ）は、単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。

成分（Ｃ）の例としては、フェノール樹脂、酸無水物、アミン化合物（芳香族アミン等）及びイミダゾール誘導体等を挙げることができる。

フェノール樹脂の例としては、フェノールノボラック樹脂、クレゾールノボラック樹脂、ナフトール修飾フェノール樹脂、ジシクロペンタジエン修飾フェノール樹脂及びｐ－キシレン修飾フェノール樹脂を挙げることができる。

酸無水物の例としては、メチルテトラヒドロフタル酸無水物、メチルヘキサヒドロフタル酸無水物、アルキル化テトラヒドロフタル酸無水物、ヘキサヒドロフタル酸無水物、メチルハイミック無水物、ドデセニル無水コハク酸及びメチルナド酸無水物を挙げることができる。

アミン化合物の例としては、芳香族アミン、例えばメチレンジアニリン、ｍ－フェニレンジアミン、４，４’－ジアミノジフェニルスルホン及び３，３’－ジアミノジフェニルスルホンを挙げることができる。

本発明においては、成分（Ｃ）が、酸無水物、アミン化合物及びフェノール樹脂からなる群より選択される少なくとも１種を含むことが好ましい。本発明の液状エポキシ樹脂組成物を硬化させて得られる硬化物の誘電特性の観点から、成分（Ｃ）が酸無水物であることが特に好ましい。

[0043] 本発明の液状エポキシ樹脂組成物中の成分（Ｃ）の含有量は、特に限定されないが、上記成分（Ａ）及び（Ｂ）のエポキシ基の合計量に対し、成分（Ｃ）のエポキシ基と反応する官能基（酸無水基、アミノ基、ヒドロキシル基等）の合計量がほぼ当量であることが好ましい。すなわち、上記成分（Ａ）及び（Ｂ）中のエポキシ基の合計量を１当量とすると、上記成分（Ｃ）の

エポキシ基と反応する官能基の合計量が、好ましくは0.3～1.5当量、より好ましくは0.6～1.2当量である。官能基の合計量が上記の範囲外であると、未反応の官能基が多くなるため、加水分解性が高くなるなどの悪影響があり、また吸水性が高くなることから、誘電特性の悪化を招く。

[0044] 成分(C)は、市販品(例えば、YH306(酸無水物、三菱化学製)、HDA A(アミン化合物、日本化薬製)、MEH8005(フェノール樹脂、明和化成製)等)として入手することができる。

[0045] [充填剤(成分(D))]

本発明の液状エポキシ樹脂組成物は、充填剤を含有する。以降、この充填剤を「成分(D)」と称する場合がある。

成分(D)は、本発明の液状エポキシ樹脂組成物を接着剤又は封止材として用いる際の、被着材に対する接着強度を向上する作用を有するので、成分(D)の使用は本発明において重要な意義を有する。

[0046] 成分(D)は特に限定されず、公知の充填剤を使用することができる。成分(D)は、単独で使用しても、2種以上を併用してもよい。成分(D)の具体的な例としては、シリカ充填剤、アルミナ充填剤、タルク充填剤、炭酸カルシウム充填剤等が挙げられる。好ましくは、成分(D)が、シリカ充填剤及びアルミナ充填剤からなる群より選択される少なくとも1種を含む。

[0047] 成分(D)の平均粒径は、特に限定されないが、レーザー回折散乱式粒度分布計によって測定されたメジアン径(D50)としての平均粒径で、好ましくは0.01～20 μ mであり、より好ましくは0.1～10 μ mであり、最も好ましくは0.3～7 μ mである。

[0048] 本発明の液状エポキシ樹脂組成物において、成分(D)の質量は、液状エポキシ樹脂組成物の総質量に対し、40%以上、65%以下である。40%未満であると、本発明の液状エポキシ樹脂組成物の示す接着強度が不十分になる。一方、65%超であると、本発明の液状エポキシ樹脂組成物の粘度が過度に高くなり、狭ギャップへの注入性が不十分になる。成分(D)の質量は、液状エポキシ樹脂組成物の総質量に対し、好ましくは50%以上、60

%以下である。

[0049] 成分(D)は、市販品(例えば、S O-E 5(シリカ充填剤、アドマテックス製))として入手することができる。

[0050] 本発明の液状エポキシ樹脂組成物は、必要に応じて、必須成分である上記成分(A)～(D)に加え、任意成分を含有していてもよい。以降、それらの任意成分につき説明する。

[0051] [硬化促進剤(成分(E))]

本発明の液状エポキシ樹脂組成物は、所望であれば、硬化促進剤を含有してもよい。以降、この硬化促進剤を「成分(E)」と称する場合がある。一態様において、本発明の液状エポキシ樹脂組成物は、硬化促進剤を更に含む。

[0052] 本発明において用いる成分(E)は、成分(C)によるエポキシ樹脂(上記成分(A)及び(B))の硬化を促進しうる化合物であれば特に限定されず、公知のそのような化合物、例えばイミダゾール化合物を使用することができる。成分(E)は、単独で使用しても、2種以上を併用してもよい。

[0053] イミダゾール化合物の例としては、1-メチルイミダゾール、2-ヘプタデシルイミダゾール、2-フェニル-4,5-ジヒドロキシメチルイミダゾール、2-ウンデシルイミダゾール、2-フェニル-4-メチル-5-ヒドロキシメチルイミダゾール、2-フェニル-4-ベンジル-5-ヒドロキシメチルイミダゾール、2,4-ジアミノ-6-(2-メチルイミダゾリル-(1))-エチル-S-トリアジン、2,4-ジアミノ-6-(2'-メチルイミダゾリル-(1)')-エチル-S-トリアジン・イソシアヌール酸付加物、2-メチルイミダゾール、2-フェニルイミダゾール、2-フェニル-4-メチルイミダゾール、1-シアノエチル-2-フェニルイミダゾール、1-シアノエチル-2-メチルイミダゾール-トリメリテイト、1-シアノエチル-2-フェニルイミダゾール-トリメリテイト、N-(2-メチルイミダゾリル-1-エチル)-尿素、N,N'-(2-メチルイミダゾリル-(1)-エチル)-アジボイルジアミド等が挙げられるが、これらに限

定されない。これらのイミダゾール化合物は、市販品（例えば、2 P 4 M Z（2-フェニル-4-メチルイミダゾール、四国化成製）等）として入手することができる。

[0054] また成分（E）は、潜在性硬化促進剤であってもよい。潜在性硬化促進剤とは、室温では不活性の状態で、加熱等により活性化されて、硬化促進剤として機能する化合物であり、例えば、常温で固体のイミダゾール化合物；アミン化合物とエポキシ化合物の反応生成物（アミン-エポキシアダクト系）等の固体分散型アミンアダクト系潜在性硬化促進剤；アミン化合物とイソシアネート化合物または尿素化合物の反応生成物（尿素型アダクト系）等が挙げられる。

[0055] 潜在性硬化促進剤の市販品の代表的な例としては、アミン-エポキシアダクト系（アミンアダクト系）としては、「アミキュアPN-23」（味の素ファインテクノ（株）商品名）、「アミキュアPN-40」（味の素ファインテクノ（株）商品名）、「アミキュアPN-50」（味の素ファインテクノ（株）商品名）、「ハードナーX-3661S」（エー・シー・アール（株）商品名）、「ハードナーX-3670S」（エー・シー・アール（株）商品名）、「ノバキュアHX-3742」（旭化成（株）商品名）、「ノバキュアHX-3721」（旭化成（株）商品名）、「ノバキュアHXA9322HP」（旭化成（株）商品名）、「ノバキュアHXA3922HP」（旭化成（株）商品名）、「ノバキュアHXA3932HP」（旭化成（株）商品名）、「ノバキュアHXA5945HP」（旭化成（株）商品名）、「ノバキュアHXA9382HP」（旭化成（株）商品名）、「フジキュアーFXR1121」（T&K TOKA（株）商品名）などが挙げられ、また、尿素型アダクト系としては、「フジキュアーFXE-1000」（T&K TOKA（株）商品名）、「フジキュアーFXR-1030」（T&K TOKA（株）商品名）等が挙げられるが、これらに限定されない。

成分（E）としては、ポットライフ、硬化性の観点から、固体分散型アミンアダクト系の潜在性硬化促進剤が好ましい。

[0056] 上記成分（E）を用いることにより、本発明の液状エポキシ樹脂組成物を低温条件下でも短時間で硬化させることができる。

なお成分（E）には、エポキシ樹脂（上記成分（B））に分散された分散液の形態で提供されるものがある。そのような形態の成分（E）を使用する場合、それが分散しているエポキシ樹脂の量も、本発明の液状エポキシ樹脂組成物における成分（B）の量に含まれることに注意すべきである。

[0057] 本発明の液状エポキシ樹脂組成物は、所望であれば、上記成分（E）以外の任意成分、例えば単官能エポキシ樹脂、安定剤、カップリング剤等を更に含有していてもよい。

また、本発明の液状エポキシ樹脂組成物には、所望であれば、本発明の趣旨を損なわない範囲で、更に他の添加剤、例えばカーボンブラック、チタンブラック、イオントラップ剤、レベリング剤、酸化防止剤、消泡剤、揺変剤、粘度調整剤、難燃剤、着色剤、溶剤等を添加することができる。各添加剤の種類、添加量は常法通りである。

[0058] [液状エポキシ樹脂組成物]

本発明の液状エポキシ樹脂組成物は、上記各成分を混合することにより製造することができる。本発明の液状エポキシ樹脂組成物を製造する方法は、特に限定されない。例えば、成分（A）～（D）及び所望であれば成分（E）その他の任意成分を、適切な混合機に同時に、または別々に導入して、必要であれば加熱により溶融しながら攪拌して混合し、均一な組成物とすることにより、本発明の液状エポキシ樹脂組成物を得ることができる。この混合機は特に限定されないが、攪拌装置及び加熱装置を備えたライカイ機、ヘンシェルミキサー、3本ロールミル、ボールミル、プラネタリーミキサー、ビーズミル等を使用することができる。また、これら装置を適宜組み合わせて使用してもよい。

[0059] このようにして得られた液状エポキシ樹脂組成物は熱硬化性であり、温度140～170℃の条件下では、0.5～6時間で硬化することが好ましく、1～2時間で硬化することがより好ましい。

[0060] 本発明の液状エポキシ樹脂組成物は、例えば、種々の電子部品を含む半導体装置や、電子部品を構成する部品同士を固定、接合又は保護するための、接着剤、封止材、又はその原料として用いることができる。本発明の液状エポキシ樹脂組成物は、電子部品などを保護したり、基板に固定したりするためのアンダーフィル材として特に好適である。

電子部品用の接着剤や封止材は、狭小部への注入が必要になることがあるが、本発明の液状エポキシ樹脂組成物は、常温では低粘度の液体であるため、これらの用途に適している。本発明の液状エポキシ樹脂組成物は特に、電子部品を基板に実装する際、それらの間の狭い隙間に毛細管現象を利用して注入されるキャピラリーアンダーフィル材として有用である。

[0061] 狭ギャップへの注入性の観点から、E型粘度計を用いて測定した本発明の液状エポキシ樹脂組成物の25℃における粘度は、好ましくは0.1～100 Pa・s、より好ましくは0.2～70 Pa・s、更に好ましくは0.3～60 Pa・sである。

[0062] なお本明細書において、ある物質が「液状」であるとは、その物質が25℃において液体の状態にあることを意味する。「液体」とは、好ましくはE型粘度計を用いて測定した、25℃における粘度0.001～1000 Pa・sである流体を意味する。上記物質は純物質であってもよく、混合物であってもよい。この混合物は、均一系の形態にあるもの（溶液等）であってもよく、不均一系の形態にあるもの（乳液、懸濁液等）であってもよい。すなわち、特に断らない限り、この混合物が全体として上記要件を満足していれば、この混合物が上記液体に該当しない成分を含んでいても、その混合物は液状であると見なされる。

[0063] 加えて、本発明の液状エポキシ樹脂組成物が与える硬化物は、従来の硬化物に比して、比誘電率、誘電正接等の誘電特性に優れている。そのため、本発明の液状エポキシ樹脂組成物を、特に高周波の信号を処理する回路を含む基板の作成に使用すると、従来のエポキシ樹脂組成物を使用する場合に比して、伝送損失及び伝播遅延時間を大幅に抑制することができる。

[0064] 本発明において、用語「比誘電率」及び「誘電正接」は各々、J I S C 2 1 3 8「電気絶縁材料－比誘電率及び誘電正接の測定方法」で定義されている比誘電率及び誘電正接を意味する。

これらの値は、測定する周波数帯に適した公知の方法、例えば空洞共振器、誘電体共振器等を用いる方法により測定することができる。この明細書において特に断りがない場合は、比誘電率及び誘電正接は、25℃において誘電体共振器を用いて測定した値である。

[0065] 好ましくは、本発明の液状エポキシ樹脂組成物を硬化させて得られる硬化物の比誘電率は、測定周波数10GHzにおいて、好ましくは2.2～3.8、より好ましくは2.2～3.5、更に好ましくは2.2～3.1である。また、本発明の液状エポキシ樹脂組成物を硬化させて得られる硬化物の誘電正接は、測定周波数10GHzにおいて、好ましくは0.003～0.015、より好ましくは0.003～0.01、更に好ましくは0.003～0.007である。

[0066] 本発明においては、本発明の液状エポキシ樹脂組成物を含む接着剤又は封止材も提供される。本発明の接着剤又は封止材は、例えば、電子部品などを保護したり、基板に固定したりするためのアンダーフィル材、特にキャピラリーアンダーフィル材として好適である。好ましくは、本発明の液状エポキシ樹脂組成物を含む接着剤又は封止材は、一液型である。

また、本発明においては、本発明の液状エポキシ樹脂組成物、或いは接着剤又は封止材を硬化させて得られる硬化物も提供される。

さらには、本発明においては、本発明の硬化物を含む電子部品も提供される。

[0067] また、本発明の液状エポキシ樹脂組成物は、フィルムの構成材料として使用することもできる。特に、本発明の液状エポキシ樹脂組成物は、配線パターンを保護するカバーレイ用フィルムや、多層配線基板の層間接着フィルムに好適である。また、本発明の液状エポキシ樹脂組成物を含むフィルムは、好ましくは、電子部品用に使用することができる。本発明においては、本発

明の液状エポキシ樹脂組成物を含むフィルムも提供される。

[0068] 本発明の液状エポキシ樹脂組成物を含むフィルムは、本発明の液状エポキシ樹脂組成物から公知の方法により得ることができる。例えば、本発明の液状エポキシ樹脂組成物を溶剤で希釈してワニスとし、これを支持体の少なくとも片面に塗布し、乾燥させた後、支持体付のフィルム、または、支持体から剥離したフィルムとして提供することができる。

[0069] 本発明においては、本発明の液状エポキシ樹脂組成物を硬化させて得られる硬化物も提供される。また、本発明においては、本発明の液状エポキシ樹脂組成物を含む接着剤又は封止材を硬化させて得られる硬化物、及び本発明の液状エポキシ樹脂組成物を含むフィルムを硬化させて得られる硬化物も提供される。

さらには、本発明においては、本発明の硬化物、本発明の接着剤若しくは封止材の硬化物、又は本発明のフィルムの硬化物を含む電子部品も提供される。

実施例

[0070] 以下、本発明について、実施例により説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

[0071] 実施例 1 ～ 10、比較例 1 ～ 6

表 1 に示す配合に従って、所定の量の各成分を混合することにより、液状エポキシ樹脂組成物を調製した。表 1 において、各成分の量は質量部で表されている。

[0072] ・第 1 のエポキシ樹脂（成分（A））

実施例及び比較例において、成分（A）として用いた化合物は、以下の通りである。

（A-1）：イソステアリン酸エステル型エポキシ樹脂（商品名：FOLDIE201、日産化学製、エポキシ当量：285）

[0073] ・第 2 のエポキシ樹脂（成分（B））

実施例及び比較例において、成分（B）として用いた化合物は、以下の通

りである。

(B-1) : ビスフェノールF型エポキシ樹脂 (商品名 : YDF-8170、新日鐵住金製、エポキシ当量 : 159)

(B-2) : ビスフェノールA型エポキシ樹脂 (商品名 : EXA-850CRP、DIC製、エポキシ当量 : 172)

[0074] ・硬化剤 (成分 (C))

実施例及び比較例において、成分 (C) として用いた化合物は、以下の通りである。

(C-1) : YH306 (酸無水物、三菱化学製)

(C-2) : HDA (アミン化合物、日本化薬製)

(C-3) : MEH8005 (フェノールノボラック樹脂、明和化成製)

[0075] ・充填剤 (成分 (D))

実施例及び比較例において、成分 (D) として用いた化合物は、以下の通りである。

(D-1) : SO-E5 (シリカ充填剤 (粒径 $1.3 \sim 1.7 \mu\text{m}$)、アドマテックス製)

[0076] ・硬化促進剤 (成分 (E))

実施例及び比較例において、成分 (E) として用いた化合物は、以下の通りである。

(E-1) : 2P4MZ (2-フェニル-4-メチルイミダゾール、四国化成製)

[0077] 実施例及び比較例においては、液状エポキシ樹脂組成物及び硬化物の特性を、以下のようにして測定した。

[0078] [液状エポキシ樹脂組成物の粘度]

東機産業社製E型粘度計 (型番 : TVE-22H、ローター名 : $1^\circ 34' \times R24$) (適切な測定レンジ (H、RまたはU) に設定) を用い、液状エポキシ樹脂組成物の粘度 (単位 : $\text{Pa} \cdot \text{s}$) を、 25°C で、ローター回転数 1 rpm で測定した。結果を表1に示す。

[0079] [せん断接着強度]

F R - 4 グレードのガラスクロス－エポキシ樹脂基板に、2 mm 角のシリコンチップ（S i N 膜形成により表面を安定化したもの）を、0.5 mg の液状エポキシ樹脂組成物を用いて接着し、150℃で2時間硬化させて、試料を得た。得られた各試料に関し、Bond Tester Series 4000（ARCTEC製）を用いて、ヘッドスピード200.0 $\mu\text{m/s}$ でせん断接着強度（単位：K g f）を測定した。結果を表1に示す。

[0080] [注入性]

110℃において、20 μm のギャップ（間隙）に液状エポキシ樹脂組成物を注入し、注入された液状エポキシ樹脂組成物が、注入位置から20 mm の位置に到達するまでの時間を測定した。この位置に到達するまでの時間が短いほど、注入性が良いことを示している。

[0081] [比誘電率（ ϵ ）及び誘電正接（ $\tan \delta$ ）]

離型剤を施した50 μm 厚のポリエチレンテレフタレート（PET）フィルム上に、塗布機を用いて乾燥塗膜が $25 \pm 5 \mu\text{m}$ の膜厚になるように液状エポキシ樹脂組成物を塗布した後、150℃で120分間加熱することにより、液状エポキシ樹脂組成物を硬化させ、エポキシ樹脂フィルムを得た。得られたエポキシ樹脂フィルムを、PETフィルムごと $130 \times 40 \text{ mm}$ に裁断した後、PETフィルムを除去することにより、比誘電率及び誘電正接測定用試料を作製した。

スプリットポスト誘電体共振器（SPDR）により、温度25℃、周波数10 GHz で、上記測定用試料の比誘電率（ ϵ ）、誘電正接（ $\tan \delta$ ）を測定した。結果を表1に示す。

[0082]

[表1-1]

表 1

		実施例1	比較例1	比較例2	実施例2	実施例3	実施例4	比較例3
成分(A)	(A-1)	16.83	—	33.66	20.20	13.47	11.78	10.10
	質量比 ^a	70.0	—	70.0	70.0	70.0	70.0	70.0
成分(B)	(B-1)	7.21	19.55	14.43	8.66	5.77	5.05	4.33
	質量比 ^b	30.0	100.0	30.0	30.0	30.0	30.0	30.0
	(B-2)	—	—	—	—	—	—	—
	質量比 ^b	—	—	—	—	—	—	—
成分(C)	(C-1)	24.45	28.95	48.91	29.35	19.56	17.12	14.67
	(C-2)	—	—	—	—	—	—	—
	(C-3)	—	—	—	—	—	—	—
成分(D)	(D-1)	50.00	50.00	—	40.00	60.00	65.00	70.00
	含有量 ^c	50%	50%	0%	40%	60%	65%	70%
成分(E)	(E-1)	1.50	1.50	3.00	1.80	1.20	1.05	0.90
合計		100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00
せん断接着強度 (Kgf)		15.50	28.55	8.20	12.70	17.40	18.40	21.10
50um注入性 (秒)		131	150	25	122	254	553	注入不良
粘度 (Pa・s)		1.75	3.14	0.34	1.62	18.32	54.12	388.20
誘電特性	ϵ	3.0221	2.9817	2.6555	2.7882	3.0594	3.0822	3.1450
	Tan δ	0.00652	0.00913	0.00904	0.00754	0.00537	0.00502	0.00476

a : 成分 (A) と成分 (B) の合計質量に対する、成分 (A) の質量の比 (%)

b : 成分 (A) と成分 (B) の合計質量に対する、成分 (B) の質量の比 (%)

c : 液状エポキシ樹脂組成物の総質量に対する、成分 (D) の質量の比 (%)

[表1-2]

表 1 (続き)

		比較例4	実施例5	実施例6	実施例7	比較例5	比較例6
成分(A)	(A-1)	6.38	8.75	13.97	19.89	23.16	26.67
	質量比 ^a	30.0	40.0	60.0	80.0	90.0	100.0
成分(B)	(B-1)	14.88	13.13	9.31	4.97	2.57	—
	質量比 ^b	70.0	60.0	40.0	20.0	10.0	—
	(B-2)	—	—	—	—	—	—
	質量比 ^b	—	—	—	—	—	—
成分(C)	(C-1)	27.25	26.61	25.22	23.64	22.76	21.82
	(C-2)	—	—	—	—	—	—
	(C-3)	—	—	—	—	—	—
成分(D)	(D-1)	50.00	50.00	50.00	50.00	50.00	50.00
	含有量 ^c	50%	50%	50%	50%	50%	50%
成分(E)	(E-1)	1.50	1.50	1.50	1.50	1.50	1.50
合計		100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00
せん断接着強度 (Kgf)		23.50	19.03	17.24	14.25	8.85	7.10
50um注入性 (秒)		189	165	145	110	94	85
粘度 (Pa・s)		2.38	2.15	1.89	1.54	1.48	1.22
誘電特性	ϵ	2.9678	3.0068	3.0185	3.0411	3.0637	3.0728
	Tan δ	0.00903	0.00728	0.00693	0.00581	0.00575	0.00565

a : 成分 (A) と成分 (B) の合計質量に対する、成分 (A) の質量の比 (%)

b : 成分 (A) と成分 (B) の合計質量に対する、成分 (B) の質量の比 (%)

c : 液状エポキシ樹脂組成物の総質量に対する、成分 (D) の質量の比 (%)

[表1-3]

表 1 (続き)

		実施例8	実施例9	実施例10
成分(A)	(A-1)	17.14	27.43	21.40
	質量比 ^a	70.0	70.0	70.0
成分(B)	(B-1)	—	11.76	9.17
	質量比 ^b	—	30.0	30.0
	(B-2)	7.35	—	—
	質量比 ^b	30.0	—	—
成分(C)	(C-1)	24.02	—	—
	(C-2)	—	10.81	—
	(C-3)	—	—	17.93
成分(D)	(D-1)	50.00	50.00	50.00
	含有量 ^c	50%	50%	50%
成分(E)	(E-1)	1.50	—	1.50
合計		100.00	100.00	100.00
せん断接着強度 (Kgf)		16.33	25.15	24.20
50um注入性 (秒)		152	224	256
粘度 (Pa・s)		3.43	4.44	11.28
誘電特性	ϵ	3.0114	2.7884	3.3254
	Tan δ	0.00674	0.02250	0.01884

a : 成分(A)と成分(B)の合計質量に対する、成分(A)の質量の比(%)

b : 成分(A)と成分(B)の合計質量に対する、成分(B)の質量の比(%)

c : 液状エポキシ樹脂組成物の総質量に対する、成分(D)の質量の比(%)

[0083] (結果の考察)

表1より明らかなように、本発明の液状エポキシ樹脂組成物は、誘電特性(比誘電率及び誘電正接)、注入性及び接着強度のいずれも優れている(実施例1～10)。

成分(A)の質量が、成分(A)と成分(B)の合計質量に対し40%未満であると、液状エポキシ樹脂組成物を硬化させて得られる硬化物の誘電特性が十分向上されない(比較例1及び4)。

一方、成分(A)の質量が、成分(A)と成分(B)の合計質量に対し80%超であると、液状エポキシ樹脂組成物の示す接着強度が不十分になる(比較例5及び6)。

[0084] また、成分(D)の質量が、液状エポキシ樹脂組成物の総質量に対し40%未満であると、液状エポキシ樹脂組成物の示す接着強度が不十分になり、

液状エポキシ樹脂組成物を硬化させて得られる硬化物の誘電正接も過度に高くなる（比較例２）。

一方、成分（Ｄ）の質量が、液状エポキシ樹脂組成物の総質量に対し６５％超であると、液状エポキシ樹脂組成物の示す粘度が過度に高くなり、狭ギャップへの注入性が不十分になる（比較例３）。

[0085] 以上から明らかなように、液状エポキシ樹脂組成物又はそれを硬化させて得られる硬化物が優れた誘電特性、注入性及び接着強度を示すためには、成分（Ａ）と成分（Ｂ）の合計質量に対する成分（Ａ）の質量の比及び液状エポキシ樹脂組成物の総質量に対する成分（Ｄ）の質量の比が、各々所定の範囲内にあることが必要である。

産業上の利用可能性

[0086] 本発明の液状エポキシ樹脂組成物は、常温では低粘度の液体であり、かつ電子部品を基板に固定するのに十分な接着強度を示す。また、本発明の液状エポキシ樹脂組成物を硬化させて得られる硬化物は、従来品が与える硬化物に比して低い比誘電率及び誘電正接を示す。したがって、本発明の液状エポキシ樹脂組成物を用いると、より微細化された配線を含み、より高周波の信号を処理することに対応し得る電子部品を容易に作成することができ、またこの電子部品を、十分な接着強度をもって基板に実装することができる。

符号の説明

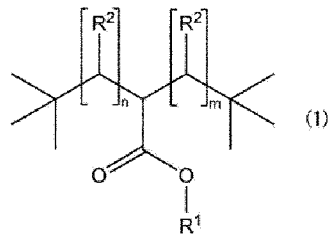
- [0087]
- １ 基板
 - ２ バンプ
 - ３ チップ
 - ４ アンダーフィル材

請求の範囲

[請求項1] 下記成分（A）～（D）：

（A）下記式（1）：

[化3]



[式中、

R¹は、1つ～3つのエポキシ基を含み、かつエーテル結合を含んでいてもよい1価の炭化水素基を表し、

R¹が2つ又は3つのエポキシ基を含むとき、R¹は分岐した構造を有し、

それぞれのR²は、独立に水素原子又はメチル基を表し、

n及びmは、各々独立に1～10の整数を表す。]

で表される構造を有する第1のエポキシ樹脂

（B）式（1）で表される構造以外の構造を有する第2のエポキシ樹脂

（C）エポキシ樹脂を硬化させることができる硬化剤

（D）充填剤

を含む液状エポキシ樹脂組成物であって、

該成分（A）の質量が、該成分（A）と該成分（B）の合計質量に対し、40%以上、80%以下であり、

該成分（D）の質量が、液状エポキシ樹脂組成物の総質量に対し、40%以上、65%以下である、液状エポキシ樹脂組成物。

[請求項2] 硬化促進剤を更に含む、請求項1記載の液状エポキシ樹脂組成物。

[請求項3] 前記成分（B）が、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、アミノフェノール型エポキシ樹脂及びナフタ

レン型エポキシ樹脂からなる群より選択される少なくとも1種を含む、請求項1又は2記載の液状エポキシ樹脂組成物。

[請求項4] 前記成分(C)が、酸無水物、アミン化合物及びフェノール樹脂からなる群より選択される少なくとも1種を含む、請求項1～3のいずれか一項記載の液状エポキシ樹脂組成物。

[請求項5] 前記成分(D)が、シリカ充填剤及びアルミナ充填剤からなる群より選択される少なくとも1種を含む、請求項1～4のいずれか一項記載の液状エポキシ樹脂組成物。

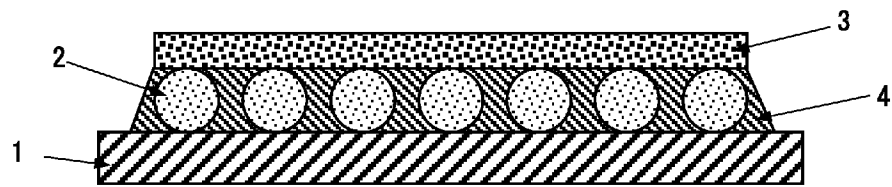
[請求項6] 請求項1～5のいずれか一項記載の液状エポキシ樹脂組成物を硬化させて得られる、硬化物。

[請求項7] 請求項1～5のいずれか一項記載の液状エポキシ樹脂組成物を含む、接着剤又は封止材。

[請求項8] 請求項1～5のいずれか一項記載の液状エポキシ樹脂組成物を含む、フィルム。

[請求項9] 請求項6記載の硬化物、請求項7記載の接着剤若しくは封止材の硬化物、又は請求項8記載のフィルムの硬化物を含む、電子部品。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2020/003854

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int. Cl. C08G59/20(2006.01)i, C09J11/04(2006.01)i, C09J11/06(2006.01)i, H01L23/29(2006.01)i, H01L23/31(2006.01)i, C09J163/00(2006.01)i, C09K3/10(2006.01)i, C08L63/00(2006.01)i, H01L21/60(2006.01)i
FI: C08C59/20, H01L23/30 R, H01L21/60 311Z, C08L63/00 C, C09J163/00, C09J11/06, C09J11/04, C09K3/10 L

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int. Cl. C08C59/20-59/72, C09J11/04, C09J11/06, H01L23/29, H01L23/31, C09J163/00, C09K3/10, C08L63/00, H01L21/60

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2020
Registered utility model specifications of Japan 1996-2020
Published registered utility model applications of Japan 1994-2020

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CAPLUS/REGISTRY (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2007-182561 A (HITACHI CHEMICAL CO., LTD.) 19 July 2007, claims, paragraphs [0024], [0035], [0039], [0053], examples	1-9
Y	WO 2017/077846 A1 (NISSAN CHEMICAL INDUSTRIES, LTD.) 11 May 2017, claims, paragraphs [0007], [0010], examples	1-9
Y	WO 2017/077845 A1 (NISSAN CHEMICAL INDUSTRIES, LTD.) 11 May 2017, claims, paragraphs [0006], [0008], [0073], examples	1-9
Y	WO 2012/046636 A1 (SUMITOMO BAKELITE CO., LTD.) 12 April 2012, claims, paragraphs [0002], [0014], [0022], examples	1-9



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
15.03.2020

Date of mailing of the international search report
31.03.2020

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2020/003854

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y A	JP 2009-120815 A (NIPPON KAYAKU CO., LTD.) 04 June 2009, claims, paragraphs [0008], [0009], [0011], [0013], [0016], [0018], [0025], examples	1, 2, 4-9 3
P, A	WO 2020/017141 A1 (JXTG NIPPON OIL & ENERGY CORPORATION) 23 January 2020, claims, paragraphs [0004], [0005]	1-9

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2020/003854

Patent Documents referred to in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
JP 2007-182561 A	19.07.2007	US 2009/0273070 A1 claims, paragraphs [0033], [0035], [0045], [0070], examples WO 2007/066763 A1 KR 10-2008-0078877 A CN 101321799 A KR 10-1044132 B1 TW 200730578 A	
WO 2017/077846 A1	11.05.2017	KR 10-2018-0080200 A CN 108350252 A TW 201731830 A	
WO 2017/077845 A1	11.05.2017	KR 10-2018-0079309 A CN 108349919 A TW 201734078 A	
WO 2012/046636 A1	12.04.2012	(Family: none)	
JP 2009-120815 A	04.06.2009	(Family: none)	
WO 2020/017141 A1	23.01.2020	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C08G 59/20(2006.01)i; C09J 11/04(2006.01)i; C09J 11/06(2006.01)i; H01L 23/29(2006.01)i; H01L 23/31(2006.01)i; C09J 163/00(2006.01)i; C09K 3/10(2006.01)i; C08L 63/00(2006.01)i; H01L 21/60(2006.01)i FI: C08G59/20; H01L23/30 R; H01L21/60 311Z; C08L63/00 C; C09J163/00; C09J11/06; C09J11/04; C09K3/10 L																							
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） C08G59/20-59/72; C09J11/04; C09J11/06; H01L23/29; H01L23/31; C09J163/00; C09K3/10; C08L63/00; H01L21/60 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1 9 2 2 - 1 9 9 6 年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1 9 7 1 - 2 0 2 0 年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1 9 9 6 - 2 0 2 0 年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1 9 9 4 - 2 0 2 0 年</td> </tr> </table> 国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語） CAplus/REGISTRY (STN)			日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年	日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 2 0 年	日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 2 0 年	日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 2 0 年													
日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年																						
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 2 0 年																						
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 2 0 年																						
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 2 0 年																						
C. 関連すると認められる文献 <table border="1"> <thead> <tr> <th>引用文献の カテゴリー*</th> <th>引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示</th> <th>関連する 請求項の番号</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>Y</td> <td>JP 2007-182561 A（日立化成工業株式会社）19.07.2007（2007 - 07 - 19） 特許請求の範囲，[0024]，[0035]，[0039]，[0053]，実施例</td> <td>1-9</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>WO 2017/077846 A1（日産化学工業株式会社）11.05.2017（2017 - 05 - 11） 特許請求の範囲，[0007]，[0010]，実施例</td> <td>1-9</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>WO 2017/077845 A1（日産化学工業株式会社）11.05.2017（2017 - 05 - 11） 特許請求の範囲，[0006]，[0008]，[0073]，実施例</td> <td>1-9</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>WO 2012/046636 A1（住友ベークライト株式会社）12.04.2012（2012 - 04 - 12） 特許請求の範囲，[0002]，[0014]，[0022]，実施例</td> <td>1-9</td> </tr> <tr> <td>Y A</td> <td>JP 2009-120815 A（日本化薬株式会社）04.06.2009（2009 - 06 - 04） 特許請求の範囲，[0008]，[0009]，[0011]，[0013]，[0016]，[0018]，[0025]，実施例</td> <td>1, 2, 4-9 3</td> </tr> <tr> <td>P, A</td> <td>WO 2020/017141 A1（J X T G エネルギー株式会社）23.01.2020（2020 - 01 - 23） 特許請求の範囲，[0004]，[0005]</td> <td>1-9</td> </tr> </tbody> </table>			引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号	Y	JP 2007-182561 A（日立化成工業株式会社）19.07.2007（2007 - 07 - 19） 特許請求の範囲，[0024]，[0035]，[0039]，[0053]，実施例	1-9	Y	WO 2017/077846 A1（日産化学工業株式会社）11.05.2017（2017 - 05 - 11） 特許請求の範囲，[0007]，[0010]，実施例	1-9	Y	WO 2017/077845 A1（日産化学工業株式会社）11.05.2017（2017 - 05 - 11） 特許請求の範囲，[0006]，[0008]，[0073]，実施例	1-9	Y	WO 2012/046636 A1（住友ベークライト株式会社）12.04.2012（2012 - 04 - 12） 特許請求の範囲，[0002]，[0014]，[0022]，実施例	1-9	Y A	JP 2009-120815 A（日本化薬株式会社）04.06.2009（2009 - 06 - 04） 特許請求の範囲，[0008]，[0009]，[0011]，[0013]，[0016]，[0018]，[0025]，実施例	1, 2, 4-9 3	P, A	WO 2020/017141 A1（J X T G エネルギー株式会社）23.01.2020（2020 - 01 - 23） 特許請求の範囲，[0004]，[0005]	1-9
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号																					
Y	JP 2007-182561 A（日立化成工業株式会社）19.07.2007（2007 - 07 - 19） 特許請求の範囲，[0024]，[0035]，[0039]，[0053]，実施例	1-9																					
Y	WO 2017/077846 A1（日産化学工業株式会社）11.05.2017（2017 - 05 - 11） 特許請求の範囲，[0007]，[0010]，実施例	1-9																					
Y	WO 2017/077845 A1（日産化学工業株式会社）11.05.2017（2017 - 05 - 11） 特許請求の範囲，[0006]，[0008]，[0073]，実施例	1-9																					
Y	WO 2012/046636 A1（住友ベークライト株式会社）12.04.2012（2012 - 04 - 12） 特許請求の範囲，[0002]，[0014]，[0022]，実施例	1-9																					
Y A	JP 2009-120815 A（日本化薬株式会社）04.06.2009（2009 - 06 - 04） 特許請求の範囲，[0008]，[0009]，[0011]，[0013]，[0016]，[0018]，[0025]，実施例	1, 2, 4-9 3																					
P, A	WO 2020/017141 A1（J X T G エネルギー株式会社）23.01.2020（2020 - 01 - 23） 特許請求の範囲，[0004]，[0005]	1-9																					
☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。 ☒ パテントファミリーに関する別紙を参照。																							
* 引用文献のカテゴリー “A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの “E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの “L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） “O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 “P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献 “T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの “X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの “Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの “&” 同一パテントファミリー文献																							
国際調査を完了した日 18.03.2020		国際調査報告の発送日 31.03.2020																					
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		権限のある職員（特許庁審査官） 内田 靖恵 4J 9553 電話番号 03-3581-1101 内線 3457																					

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2020/003854

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP	2007-182561	A	19.07.2007	US 2009/0273070 A1 特許請求の範囲, [0033], [0035], [0045], [0070], 実 施例 WO 2007/066763 A1 KR 10-2008-0078877 A CN 101321799 A KR 10-1044132 B1 TW 200730578 A	
WO	2017/077846	A1	11.05.2017	KR 10-2018-0080200 A CN 108350252 A TW 201731830 A	
WO	2017/077845	A1	11.05.2017	KR 10-2018-0079309 A CN 108349919 A TW 201734078 A	
WO	2012/046636	A1	12.04.2012	(ファミリーなし)	
JP	2009-120815	A	04.06.2009	(ファミリーなし)	
WO	2020/017141	A1	23.01.2020	(ファミリーなし)	